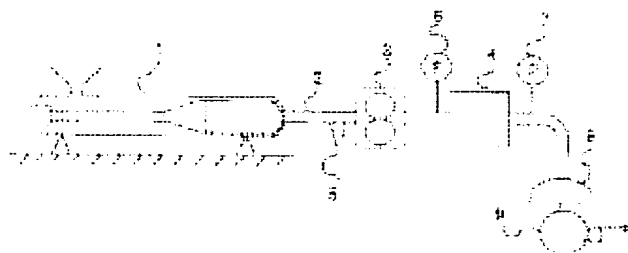


POLYESTER FILM AND ITS PRODUCTION

特許公報番号 JP11315153 (A)
 公報発行日 1999-11-16
 発明者: KOTOURA MASAOKI; YAMAGATA TETSUYA; TSUNEKAWA TETSUYA +
 出願人 TORAY INDUSTRIES +
 分類:
 一国際: **B29C47/10; B29C55/12; C08J5/18; C08L67/02; G11B5/73; G11B5/733; G11B5/84; B29K67/00; B29L7/00; B29C47/10; B29C55/12; C08J5/18; C08L67/00; G11B5/62; G11B5/84;** (IPC1-7): B29C47/10; B29C55/12; B29K67/00; B29L7/00; C08J5/18; C08L25/04; C08L67/02; C08L67/02; G11B5/704; G11B5/84
 一欧州:
 出願番号 JP19990031593 19990209
 優先権主張番号: JP19990031593 19990209; JP19980029826 19980212

要約 JP 11315153 (A)

PROBLEM TO BE SOLVED: To prepare a polyester film low in oligomer, small in reduction of intrinsic viscosity when subjected to extrusion molding, little in the asperities of the surface and high in elastic property, and to provide a production method of a polyester film capable of largely reducing a filtrating pressure, shearing heat and extrusion torque without reforming any traditional film-producing apparatus by exceedingly reducing a melting viscosity of a polyester raw material with a high intrinsic viscosity when subjected to melting extrusion. SOLUTION: This polyester film comprises (A) a polyester and (B) a styrene- based polymer having an average molecular weight of 1,000 to 20,000. The film is obtained by melt-extruding the polymer A by an extruder 1 and then adding 0.05 to 10 wt.% of the styrene-based polymer B in advance of filtrating the polyester A with a filter 4, followed by conducting a film-forming.



espacenet データベースから供給されたデータ — Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-315153

(43) 公開日 平成11年(1999)11月16日

(51) Int.Cl.⁶
C 0 8 J 5/18
B 2 9 C 47/10
55/12
C 0 8 L 67/02
G 1 1 B 5/704

識別記号
CFD

F I
C 0 8 J 5/18
B 2 9 C 47/10
55/12
C 0 8 L 67/02
G 1 1 B 5/704

審査請求 未請求 請求項の数11 O L (全 17 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平11-31593
(22) 出願日 平成11年(1999) 2 月 9 日
(31) 優先権主張番号 特願平10-29826
(32) 優先日 平10(1998) 2 月12日
(33) 優先権主張国 日本 (J P)

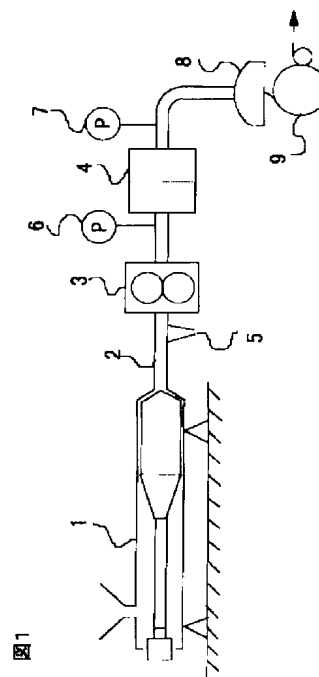
(71) 出願人 000003159
東レ株式会社
東京都中央区日本橋室町 2 丁目 2 番 1 号
(72) 発明者 琴浦 正晃
滋賀県大津市園山 1 丁目 1 番 1 号 東レ株式会社滋賀事業場内
(72) 発明者 山形 哲也
滋賀県大津市園山 1 丁目 1 番 1 号 東レ株式会社滋賀事業場内
(72) 発明者 恒川 哲也
滋賀県大津市園山 1 丁目 1 番 1 号 東レ株式会社滋賀事業場内

(54) 【発明の名称】 ポリエステルフィルムおよびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 溶融押し時の固有粘度の低下が小さく、低オリゴマーで表面粗大突起が少なく、しかも高弾性の特性を有するポリエステルフィルムを提供すること、および溶融押し時に固有粘度の高いポリエステル原料の溶融粘度を大幅に低減させることにより、従来の製膜装置を改造せずに、圧、剪断発熱、押出トルクを大幅に低下させることのできるポリエステルフィルムの製造方法を提供すること。

【解決手段】 ポリエステル (A) とスチレン系ポリマー (B) とからなるポリエステルフィルムであって、スチレン系ポリマー (B) の平均分子量が 1, 0 0 0 から 2 0, 0 0 0 の範囲内で含有されている。このフィルムは、押出機にてポリマーを溶融押しした後、ポリエステル (A) をフィルターで濾過する前までにスチレン系ポリマー (B) を 0. 0 5 から 1 0 重量% の範囲内で添加して製膜することにより得られる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】ポリエステル（A）と、スチレン系ポリマー（B）とからなるポリエステルフィルムであって、スチレン系ポリマー（B）の平均分子量が1,000から20,000の範囲内で含有されていることを特徴とするポリエステルフィルム。

【請求項2】スチレン系ポリマー（B）が、0.05から10重量%の範囲内で含有されていることを特徴とする請求項1に記載のポリエステルフィルム。

【請求項3】主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル（C）をポリエステルフィルム中に0.1～20重量%の範囲内で含有することを特徴とする請求項1または請求項2に記載のポリエステルフィルム。

【請求項4】ポリエステルフィルムの固有粘度が0.6dl/g以上であることを特徴とする請求項1から請求項3のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

【請求項5】前記ポリエステル（A）が、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン-2,6-ナフタレンジカルボキシレートおよびそれらの変性体よりなる群から選ばれた少なくとも一種であることを特徴とする請求項1から請求項4のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

【請求項6】ポリエステルフィルム中に含まれるオリゴマー量が、0.5重量%以下であることを特徴とする請求項1から請求項5のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

【請求項7】ポリエステルフィルム表面の粗大突起数が、10個/100cm²以下であることを特徴とする請求項1から請求項6のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

【請求項8】ポリエステルフィルムが一軸または二軸に配向されたフィルムであることを特徴とする請求項1から請求項7のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

【請求項9】磁気記録用途または電気絶縁用途に用いられる請求項1から請求項8のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

【請求項10】押出機にてポリマーを溶融押出した後、フィルターで濾過し、口金からシート状に押し出して製膜するポリエステルフィルムの製造方法において、該ポリマーとして、ポリエステル（A）を押出機にて溶融押し出しするとともに、該ポリエステル（A）をフィルターで濾過する前までに、該ポリエステル（A）にスチレン系ポリマー（B）を0.05から10重量%の範囲内で添加して製膜することを特徴とするポリエステルフィルムの製造方法。

【請求項11】請求項10のポリエステルフィルムの製造方法において、スチレン系ポリマー（B）を添加せずにポリエステル（A）単独でフィルター濾過して製膜する場合と比較して、フィルター濾過を5%以上低下させて製膜することを特徴とするポリエステルフィルムの製

造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、従来のポリエステルフィルムの物性と品質を大幅に向上させたフィルム、具体的には、弾性率が高く、表面欠点とオリゴマー含有量が少ない、ポリエステルフィルムとその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】従来より、弾性率を高める一つの方法として、延伸などの改良で分子配向度を上げる方法が一般によく行われている。しかしながら、フィルムの固有粘度が低いと、弾性率を高めるために、過度に分子配向させようとする、延伸時のフィルム破れが避けられず、弾性率の向上には限界があった。

【0003】固有粘度の高いポリエステルを押出して、製膜し、機械特性に優れたフィルムを得ようとする場合には、フィルター通過時の圧上昇が大きくなって押出が困難になる。この点を回避するためにフィルター部の温度を高温化すると、ポリマーが熱分解し重合度が低下して固有粘度が低下し、その結果、機械強度が低く、低品質のポリエステルフィルムしか得られないという問題があった。

【0004】特に、ポリエステルフィルムが磁気記録媒体用の場合、ポリマー中の異物をできるだけ取り除き、フィルム表面を平滑にする必要があることから、非常に細かいフィルターを用いるため圧上昇が他の用途の場合に比べて大きくなってしまい、その結果、表面が平滑で、かつ機械強度の高いフィルムを得ることが困難であった。

【0005】また、弾性率を高める別の方法として、国際公開WO87-05919号公報、特開昭57-253541号公報などで代表されるように、液晶性ポリエステルのように剛性率の高い化合物をポリエステル中に微分散させて、補強強化する方法がある。しかし、この方法では、液晶性ポリエステルの形態を繊維状に制御できた場合にその効果が顕著になるものであり、フィルムの製膜プロセスでは液晶性ポリエステル繊維の形状緩和が生じるため、必ずしも有効でないという問題があった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、上記問題点を解決し、溶融押出し時の固有粘度の低下が小さく、低オリゴマーで表面粗大突起が少なく、しかも、高弾性の特性を有するポリエステルフィルムを提供すること、および溶融押出し時に固有粘度の高いポリエステル原料の溶融粘度を大幅に低減させることにより、従来の製膜装置をなんら改造せずに、圧、剪断発熱、押出トルクを大幅に低下させることのできるポリエステルフィルムの製造方法を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、特定のスチレン系ポリマー（B）を特定量だけ添加することによりポリエステル（A）の熔融粘度が低下することを見出し本発明を完成するに至った。

【0008】すなわち、本発明のポリエステルフィルムは、ポリエステル（A）と、スチレン系ポリマー（B）とからなるポリエステルフィルムであって、スチレン系ポリマー（B）の平均分子量が1,000から20,000の範囲内で含有されていることを特徴とする。

【0009】また、本発明のポリエステルフィルムの製造方法は、押出機にてポリマーを溶融押出した後、フィルターで濾過し、口金からシート状に押し出して製膜するポリエステルフィルムの製造方法において、該ポリマーとして、ポリエステル（A）を押出機にて溶融押し出しするとともに、該ポリエステル（A）をフィルターで濾過する前までに、該ポリエステル（A）にスチレン系ポリマー（B）を0.05から10重量%の範囲内で添加して製膜することを特徴とする。

【0010】

【発明の実施の形態】以下、本発明の好ましい実施形態を説明する。

【0011】本発明のポリエステルフィルムを構成するポリエステル（A）の代表的なものとしては、芳香族ジカルボン酸、脂環族ジカルボン酸または脂肪族ジカルボン酸とジオールを主たる構成成分とするポリエステルである。

【0012】芳香族ジカルボン酸成分としては、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルスルホンジカルボン酸等を用いることができ、なかでも好ましくは、テレフタル酸、フタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸を用いることができる。脂環族ジカルボン酸成分としては、例えば、シクロヘキサンジカルボン酸等を用いることができる。脂肪族ジカルボン酸成分としては、例えば、アジピン酸、スベリン酸、セバシン酸、ドデカンジオン酸等を用いることができる。

【0013】これらの酸成分は1種のみ用いてもよく、2種以上併用してもよく、さらには、ヒドロキシエトキシ安息香酸等のオキシ酸等を一部共重合してもよい。また、ジオール成分としては、例えば、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、1,2-シクロヘキサジメタノール、1,3-シクロヘキサジメタノール、1,4-シクロヘキサジメタノール、ジエチレン

グリコール、トリエチレングリコール、ポリアルキレングリコール、2,2'-ビス(4'- β -ヒドロキシエトキシフェニル)プロパン等を用いることができ、なかでも好ましくは、エチレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,4-シクロヘキサジメタノール、ジエチレングリコール等を用いることができ、特に好ましくは、エチレングリコール等を用いることができる。これらのジオール成分は1種のみ用いてもよく、2種以上併用してもよい。

【0014】また、ポリエステルにはトリメリット酸、ピロメリット酸、グリセロール、ヘンタエリスリトール、2,4-ジオキシアニソ酸、ラウリアルアルコール、イソシアン酸フェニル等の単官能化合物等の他の化合物を、ポリマーが実質的に線状である範囲内で共重合させていてもよい。

【0015】このうち、ポリアルキレングリコールやポリエーテルジカルボン酸の平均分子量としては、好ましくは400~40,000であり、さらに好ましくは600~20,000、より好ましくは1,000~10,000である。もちろん、複数の芳香族二塩基酸と複数のグリコールからなる共重合体であってもよい。

【0016】本発明のポリエステル（A）は、特に限定されないが、機械強度の点から、ポリエチレンテレフレート、ポリエチレン-2,6-ナフタレンジカルボキシレートおよびそれらの変性体よりなる群から選ばれた少なくとも一種であることが好ましい。

【0017】本発明のポリエステルフィルムを構成するスチレン系ポリマー（B）は、主にスチレン骨格からなり、少なくともスチレンユニットを70モル%以上含有していることが好ましく、ポリスチレン、アクリロニトリル・スチレン共重合体、アクリル酸エステル・スチレン共重合体、メタクリル酸メチル・スチレン共重合体等が挙げられる。これらポリマーは2種以上併用してもよい。

【0018】ここで用いるスチレン系ポリマー（B）の平均分子量は、1,000から20,000の範囲内である。平均分子量が1,000より小さいと、押出時にブリードアウトしやすくなり、異物の少ない、フィルムを得ることが難しくなる場合がある。一方、分子量が20,000より大きくなると、フィルター圧を低減する効果が小さくなり、また、スチレン系ポリマー（B）の分散性が悪くなり、透明なフィルムを得ることが難しくなる。なお、平均分子量は2,000から10,000の範囲内が高ヤング率の観点から、より好ましい。また、スチレン系ポリマー（B）の含有量としては、0.05から10重量%であるのが好ましい。さらに好ましくは、0.2から7重量%、特に好ましくは、0.5から5重量%である。その理由は、圧低下の観点からスチレン系ポリマー（B）の含有量が0.05重量%以上、機械強度や表面特性の観点からスチレン系ポリマー

(B)の含有量は10重量%以下であることが好ましいからである。

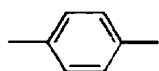
【0019】また、本発明のポリエステルフィルムにおいては、スチレン系ポリマー(B)の他に、さらに主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル(C)をポリエステル(A)に加えることも、圧低減、品質向上の点から有効である。スチレン系ポリマー(B)と主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル(C)を併用すると、共重合ポリエステル(C)が繊維状、小判状、薄片状の形態をとり、機械特性が向上する傾向が見られる。本発明で用いる主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル(C)は、主鎖にメソゲン基を有する溶融成形性があるポリエステルである。例えば、芳香族オキシカルボニル単位、芳香族ジオキシ単位、芳香族ジカルボニル単位、アルキレンジオキシ単位などから選ばれた構造単位からなる異方性溶融相を形成するポリエステルなどである。

【0020】本発明で用いる好ましい主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルの例としては、下記

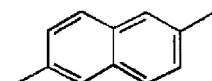
(I)、(II)、(III)および(IV)の構造単位からなる主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル、

(I)、(III)および(IV)の構造単位からなる主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル、(I)、

【化2】



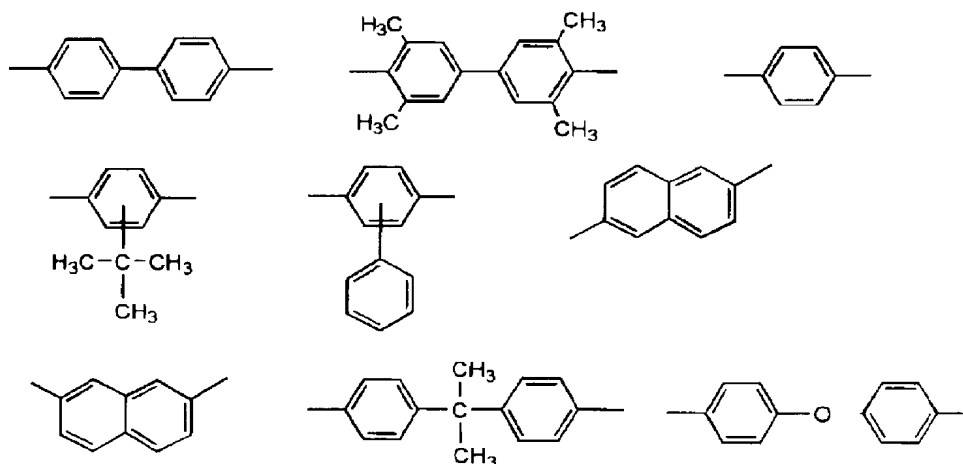
および/または



【0024】を示し、R2は

【0025】

【化3】



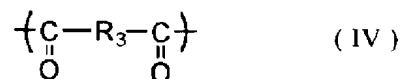
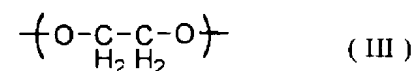
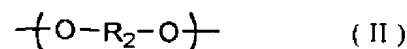
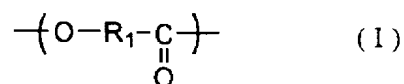
【0026】から選ばれた一種以上の基を示し、R3は、

(II)および(IV)の構造単位からなる主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルから選ばれた一種以上であるものが挙げられる。

【0021】

【化1】

【化1】



【0022】(但し式中のR1は、

【0023】

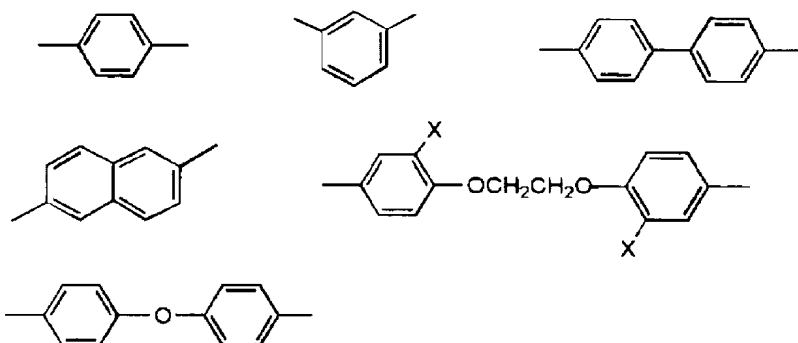
【化2】

【化3】

【0027】

【化4】

【化4】



【0028】から選ばれた一種以上の基を示す。また、式中Xは水素原子または塩素原子を示し、構造単位Ⅰ(Ⅱ)＋(Ⅲ)と構造単位(Ⅳ)は、実質的に等モルである。) 上記構造単位(Ⅰ)はp-ヒドロキシ安息香酸および/または6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸から生成したポリエステル構造単位を、構造単位(Ⅱ)は、4、4'-ジヒドロキシビフェニル、3、3'-、5、5'-テトラメチル-4、4'-ジヒドロキシビフェニル、ハイドロキノン、モープチルハイドロキノン、フェニルハイドロキノン、2、6-ジヒドロキシナフタレン、2、7-ジヒドロキシナフタレン、2、2'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンおよび4、4'-ジヒドロキシジフェニルエーテルから選ばれた芳香族ジヒドロキシ化合物から生成した構造単位を、構造単位(Ⅲ)は、エチレングリコールから生成した構造単位を、構造単位(Ⅳ)は、テレフタル酸、イソフタル酸、4、4'-ジフェニルジカルボン酸、2、6-ナフタレ

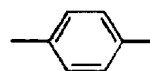
ンジカルボン酸、1、2-ビス(フェノキシ)エタン-4、4'-ジカルボン酸、1、2-ビス(2-クロロフェノキシ)エタン-4、4'-ジカルボン酸および4、4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸から選ばれた芳香族ジカルボン酸から生成した構造単位を各々示す。

【0029】また、上記構造単位(Ⅰ)、(Ⅱ)および(Ⅳ)からなる液晶ポリエステルの場合は、R1が

【0030】

【化5】

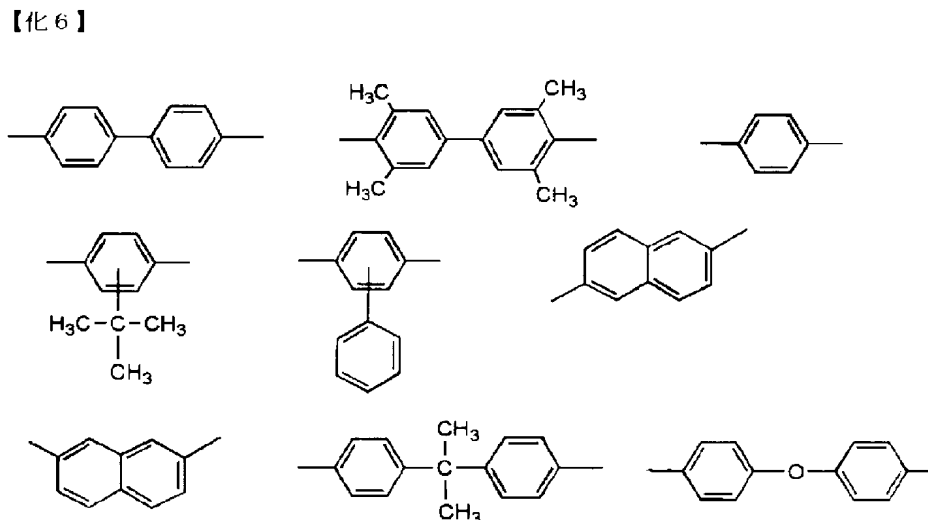
【化5】



【0031】であり、R2が

【0032】

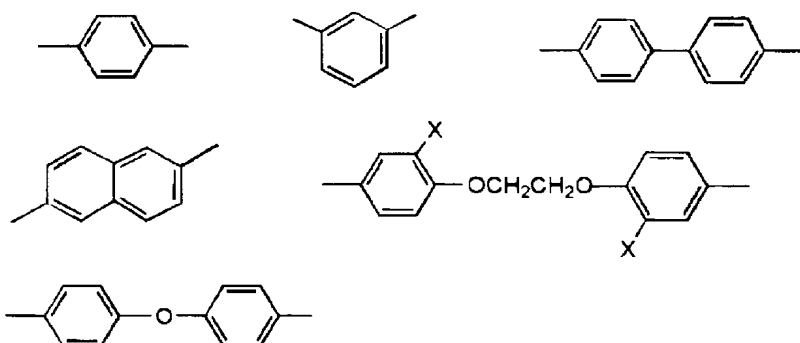
【化6】



【0033】から選ばれた一種以上であり、R3が
【0034】

【化7】

【化7】



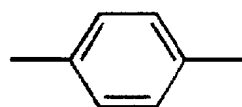
【0035】から選ばれた一種以上であるものが好ましい。

【0036】また、上記構造単位(I)、(III)および(IV)からなる主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルの場合、R1が

【0037】

【化8】

【化8】

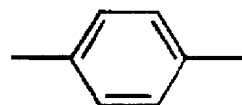


【0038】であり、R3が

【0039】

【化9】

【化9】



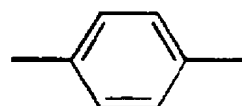
【0040】であるものが特に好ましい。

【0041】また、上記構造単位(I)、(II)、(III)および(IV)からなる主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルの場合、R1が

【0042】

【化10】

【化10】

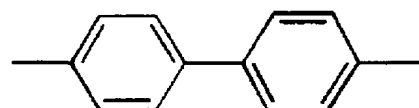


【0043】であり、R2が

【0044】

【化11】

【化11】

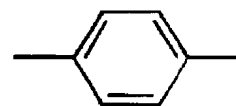


【0045】であり、R3が

【0046】

【化12】

【化12】



【0047】であるものが特に好ましい。

【0048】上記構造単位(I)、(II)、(III)および(IV)の共重合量は任意であるが、流動性、ポリエステルとの相溶性の点から次の共重合量であることが好ましい。

【0049】上記構造単位(I)、(II)および(IV)からなる主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルの場合、上記構造単位(I)は、「(I)+(II)」の15~90モル%が好ましく、40~80モル%がより好ましい。構造単位(IV)は構造単位(II)と実質的に等モルである。

【0050】また、上記構造単位(I)、(III)および(IV)からなる主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルの場合、上記構造単位(I)は、「(I)+(III)」の15~90モル%が好ましく、40~80モル%がより好ましい。構造単位(IV)は構造単位(III)と実質的に等モルである。

【0051】さらに、上記構造単位 (I)、(II)、(III) および (IV) からなる主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルの場合、上記構造単位 [(I) + (II) + (III)] に対する [(I) + (II)] のモル分率は15~90モル%が好ましく、40~80%がより好ましい。

【0052】また、構造単位 [(I) + (II) + (III)] に対する (III) のモル分率は85~100モル%が好ましく、60~20モル%がより好ましい。また、構造単位 (I) + (II) のモル比は流動性の点から好ましくは75:25~95:5であり、より好ましくは78:22~93:7である。また、構造単位 (IV) のモル数は構造単位 [(II) + (III)] のトータルモル数と実質的に等しい。

【0053】以上述べた説明中の「実質的に」とは、必要に応じてポリエステルの末端基をカルボキシル基末端あるいはヒドロキシル末端基のいずれかを多くすることができ、このような場合には構造単位 (IV) のモル数は構造単位 [(II) + (III)] のトータルモル数と完全に等しくないからである。

【0054】上記好ましい主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルを重縮合する際には、上記構造単位 (I) ~ (IV) を構成する成分以外に、3、3'-ジフェニルジカルボン酸、2、2'-ジフェニルジカルボン酸などの芳香族ジカルボン酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカンジオン酸などの脂肪族ジカルボン酸、ヘキサヒドロテレフタル酸などの脂環式ジカルボン酸、クロルヒドロキノン、メチルヒドロキノン、4、4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4、4'-ジヒドロキシジフェニルスルフィド、4、4'-ジヒドロキシベンゾフェノンなどの芳香族ジオール、1、4-ブタンジオール、1、6-ヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、1、4-シクロヘキサンジオール、1、4-シクロヘキサジメタノール等の脂肪族、脂環式ジオールおよびm-ヒドロキシ安息香酸、2、6-ヒドロキシナフトエ酸などの芳香族ヒドロキシカルボン酸およびp-アミノフェノール、p-アミノ安息香酸などを本発明の効果を損なわない程度の少割合の範囲で、さらに共重合せしめることができる。

【0055】本発明における主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルの製造方法は、特に制限がなく、従来から行われているポリエステルの重縮合法に準じて製造できる。

【0056】例えば、上記の好ましく用いられる主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルの製造法において、上記構造単位 (III) を含まない場合は下記 (1) および (2)、構造単位 (III) を含む場合は下記

(3) の製造方法が好ましい。

(1) p-アセトキシ安息香酸および4、4'-ジアセトキシビフェニル、4、4'-ジアセトキシベンゼンな

どの芳香族ジヒドロキシ化合物のジアシル化物とテレフタル酸などの芳香族ジカルボン酸から脱酢酸重縮合反応によって製造する方法。

(2) p-ヒドロキシ安息香酸および4、4'-ジヒドロキシビフェニル、ヒドロキノンなどの芳香族ジヒドロキシ化合物、テレフタル酸などの芳香族ジカルボン酸に無水酢酸を反応させて、フェノール性水酸基をアシル化した後、脱酢酸重縮合反応によって製造する方法。

(3) ポリエチレンテレフタレートなどのポリエステルのポリマー、オリゴマまたはビス(β-ヒドロキシエチル)テレフタレートなどの芳香族ジカルボン酸のビス(β-ヒドロキシエチル)エステルの存在下で(1)または(2)の方法により製造する方法。

【0057】これらの重縮合反応は、無触媒でも進行するが、酢酸第一鉛、テトラブチルチタネート、酢酸カリウムおよび酢酸ナトリウム、三酸化アンチモン、金属マグネシウムなどの金属化合物を添加した方が好ましい場合もある。

【0058】本発明に用いられるポリエステル(A)、スチレン系ポリマー(B)、主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル(C)には必要に応じて、難燃剤、熱安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、顔料、染料、脂肪酸エステル、ワックス等の有機滑剤、あるいは消泡剤を配合することができる。また、易滑性や耐摩耗性、耐スクラッチ性を付与するためにクレー、マイカ、酸化チタン、炭酸カルシウム、カリオン、タルク、湿式または乾式シリカ、コロイド状シリカ、リン酸カルシウム、硫酸バリウム、アルミナ、ジルコニア等の無機粒子、アクリル酸類、スチレン等を構成成分とする有機粒子等を配合したり、ポリエステル重合反応時に添加する触媒等によって析出する、いわゆる内部粒子を含有せしめたり、界面活性剤を配合したりすることができる。

【0059】本発明のポリエステルフィルムは、特に限定されないが、固有粘度が0.6dl/g以上、好ましくは0.8dl/g以上、さらに好ましくは1dl/g以上、最も好ましくは固有粘度1.2dl/g以上のポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン-2,6-ナフタレンジカルボキシレートが好ましい。かかる固有粘度の高いポリエステルを得る手段としては、ポリエステルチップを固相重合する方法が最も好ましく用いられる。機械強度の観点から、ポリエステルフィルムの固有粘度は0.6dl/g以上が好ましい。

【0060】また、上述した共重合ポリエステル(C)の添加量は、特に限定されないが、全ポリマー重量の0.01~10重量%、より好ましくは0.2~8重量%、特に好ましくは0.5~5重量%である。圧圧低減効果の観点から、共重合ポリエステル(C)の添加量は0.01重量%以上が好ましく、また共重合ポリエステル(C)の分散径、表面特性、機械特性の観点からは、

添加量が10重量%以下が好ましい。

【0061】また、本発明のポリエステルフィルムは、特に限定されないが、縦方向、横方向の少なくとも一方向の引張弾性率が8GPa以上であることが好ましく、より好ましくは9GPa以上、さらに好ましくは、10GPa以上である。引張弾性率は、例えば、長時間記録用磁気テープに使用した場合において、走行時に磁気ヘッドやガイドピンから受ける張力のために発生する磁気テープの伸びの抑制や、電磁変換特性の観点から、8GPa以上であることが好ましい。

【0062】特に、ポリエステル(A)が主にポリエチレン-2,6-ナフタレンジカルボキシレートであるポリエステルフィルムの場合、特に限定されないが、縦方向、横方向の少なくとも一方向の引張弾性率が11GPa以上であることが好ましく、より好ましくは13GPa以上、さらに好ましくは、15GPa以上である。引張弾性率は、データ保存用テープに使用する観点からは、11GPa以上であることが好ましい。

【0063】また、本発明のポリエステルフィルムは、特に限定されないが、表面粗大突起数(H3)が10個/100cm²以下、好ましくは7個/100cm²以下、特に好ましくは4個/100cm²以下である。磁気記録用フィルムの用途の特性の観点から、表面粗大突起数(H3)が10個/100cm²以下であることが好ましい。さらに異物の精度の高い評価法として最大突起高さの目安として2枚のフィルムを密着させ、異物によるフィルム間隔を測定するBASFが開発したニュートンリング光干渉を利用したBPM(BASF Projection Method)を用いて0.54μmのn次の高さの個数を検出する。5次以上、好ましくは3次以上の干渉がないことが好ましい。

【0064】また、本発明のポリエステルフィルム中のオリゴマー量は、特に限定されないが、0.5重量%以下、好ましくは0.4重量%以下、さらに好ましくは0.3重量%以下であることが好ましい。オリゴマー量は、例えば、電絶用フィルムとして用いた場合、長期間使用しているうちに、モーター部にオリゴマーが蓄積して、使用不可となるなどの問題発生を抑制する観点から、0.5重量%以下であることが好ましい。

【0065】また、本発明のポリエステルフィルムの長期耐熱性は、特に限定されないが、長手方向、幅方向ともに、80時間以上が好ましく、さらに好ましくは100時間以上である。電気絶縁用の観点からは、長期耐熱性は80時間以上が好ましい。

【0066】また、本発明のポリエステルフィルムは単膜でもよいが、これに他のポリマー層、例えば、ポリエステル、ポリオレフィン、ポリアミド、ポリ塩化ビニリデン、アクリル系ポリマーなどを積層してもよい。

【0067】特に、ポリエステル層を表層に薄く積層する場合、積層部の厚み(M)は、該積層部に含有されて

いる粒子の平均径(N)よりも薄くする(M<N)、好ましくは、Nの1/1000~1/2、さらに好ましくは、1/100~1/10とすることにより、走行性、易滑性、平滑性に優れたフィルムとすることができ、特に表面特性を重視する磁気記録用のベースフィルムとしては好ましい。

【0068】特に、ポリエステルからなる3層以上の積層フィルムは、2つの表層部の表面の平滑性を個別に制御できるので、磁材用フィルムとして品質向上を図る上で有効である。また、3層以上の積層フィルムにおいて中央層に回収原料などを混合させておくと、生産性向上を図ることもできる。このような粒子としては、酸化珪素、酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、酸化チタン、酸化アルミニウム、架橋ポリエステル、架橋ポリスチレン、マイカ、タルク、カオリン等が挙げられるが、これらに限定されることはない。

【0069】本発明のポリエステルフィルムは、特に限定されないが、一軸または二軸に配向されたフィルムであることが、機械強度、電気特性に対する効果の点から、好ましい。このようなポリエステルフィルムは、特に限定されないが、通常、厚さが1000μm以下の膜状物であり、好ましくは、3~500μm、さらに好ましくは4~200μmの範囲である。

【0070】以上に述べた本発明のポリエステルフィルムにおいて、特に有効なのは、磁気記録媒体用、電気絶縁用であるが、その他にも、コンデンサ用、包装用、製缶用、リボン用等に用いることもできる。

【0071】次に、本発明のポリエステルフィルムの製造方法の好ましい実施の形態について、以下に工程毎に説明するが、必ずしもこれに限定されるものではない。

【0072】ここではポリエステル(A)としてポリエチレンテレフタレートを用いた例を示すが、使用するポリエステルにより製造条件はもちろん異なる。

(1) (重合工程)

常法に従って、テレフタル酸とエチレングリコールからエステル化し、または、テレフタル酸ジメチルとエチレングリコールをエステル交換により、ビスβ-ヒドロキシエチルテレフタレート(BHT)を得る。

【0073】次に、このBHTを重合槽に移行しながら、真空下で280℃に加熱して重合反応を進める。ここで、固有粘度が0.5程度のポリエステルを得る。このとき、所定量のスチレン系ポリマー(B)を添加しておいてもよい。得られたポリエステルのベレット状で減圧下において固相重合する。固相重合する場合は、あらかじめ180℃以下の温度で予備結晶化させた後、190~250℃で1mmHg程度の減圧下、10~50時間固相重合させる。

(2) (調合工程)

次に、該高固有粘度のポリエチレンテレフタレート

(A)とスチレン系ポリマー(B)を混合する。混合比

は上述したように、ポリエチレンテレフタレート—スチレン系ポリマー＝99.5/0.5～90/10重量%である。

【0074】スチレン系ポリマー(B)をポリエチレンテレフタレートに添加する時期は、先に述べたように、ポリエチレンテレフタレートの重合前、例えば、エステル化反応前に添加してもよいし、重合後で押出機による溶融押出前に添加してもよい。また、溶融押出し前に、ポリエチレンテレフタレートとスチレン系ポリマー(B)をベレタイズしてもよい。すなわち、少なくともポリエチレンテレフタレートをフィルターで濾過する前までに添加すればよい。

(3) (押出工程)

次に、該高固有粘度のポリエチレンテレフタレートとスチレン系ポリマー(B)をブレンドした原料や、これらをいったん溶融させて均一混合させた原料を、180℃で3時間以上真空乾燥した後、固有粘度が低下しないように窒素気流下、あるいは真空下で280℃に加熱された押出機に供給する。

【0075】ここで、本発明のポリエチレンテレフタレートの製造方法は、押出機にてポリマーを溶融押出した後、フィルター濾過して製膜するポリエチレンテレフタレートの製造方法において、溶融押出前にポリエチレンテレフタレートにスチレン系ポリマー(B)を0.05から10重量%の範囲内で添加することにより製膜することを特徴とするものである。

【0076】さらに詳しくは、押出機にてポリマーを溶融押出した後、フィルター濾過して製膜するポリエチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、特に限定されないが、溶融押出前にポリエチレンテレフタレートにスチレン系ポリマー(B)を添加することにより、ポリエチレンテレフタレート単独でフィルター濾過する場合と比較して、フィルター濾圧が5%以上低下する。フィルター濾圧が、好ましくは10%以上、さらには、20%以上低下することが好ましい。溶融押出時の固有粘度低下抑制、オリゴマー抑制、表面特性の観点から、フィルター濾圧の低下が5%以上であることが好ましい。

【0077】あるいは、押出機にてポリマーを溶融押出した後、フィルター濾過して製膜するポリエチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、特に限定されないが、溶融押出前にポリエチレンテレフタレートにスチレン系ポリマー(B)と主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル(C)を添加することにより、ポリエチレンテレフタレート単独でフィルター濾過する場合と比較して、フィルター濾圧を5%以上低下させることができる。このような方法により、場合によってはフィルター濾圧を、好ましくは10%以上、さらには、20%以上低下させることができる。

【0078】もちろん、このとき、押出機での剪断速度

は20秒⁻¹以上、好ましくは50秒⁻¹以上と高い方がスチレン系ポリマー(B)が押出機内でよく分散し、本発明の効果が大きくなり好ましいが、剪断速度を300秒⁻¹以上に大きくすると、剪断発熱によってポリマーが熱分解するので好ましくない。また、異物を除去するためにフィルター、例えば焼結金属、多孔性セラミックス、サンド、金網などを用いることが好ましい。

(4) (キャスト工程)

Tダイによりシート状に押出時のドラフト比は好ましくは10～200、より好ましくは15～100である。

(5) (延伸・熱処理工程)

その後、シート状のキャストフィルムを80～150℃の加熱ロール群で加熱し、縦方向に2～7倍に1段もしくは2段以上の多段で延伸し、20～50℃の冷却ロール群で冷却する。

【0079】続いて、テンターに導いて、該フィルムの両端をクリップで把持しながら、80～150℃に加熱された熱風雰囲気中で加熱し、横方向に2～6倍延伸する。続いて、該フィルムに150～250℃の温度で熱固定を施す。熱固定は緊張下で行ってもよく、また熱寸法安定性をさらに向上させるために、幅方向に弛緩することも好ましく行われる。また、必要に応じ、熱固定を行う前に、再縦延伸およびまたは再横延伸を行うこともできる。

【0080】

【実施例】本発明を実施例、比較例に基づいて説明する。

【0081】ここで、物性の測定方法と効果の評価方法については、以下に述べる方法を用いた。また、以下に述べる実施例、比較例で述べる種々のポリエステル(A)については、表1、表4に記載のポリエステル(A)を用いた。

【0082】

【物性の測定方法および効果の評価方法】(1)固有粘度
25℃で、オルトクロロフェノール中、0.1g/dm³濃度で、25℃で測定した値である。単位はdl/gで表す。

(2)溶融粘度

融点(T_m)＝15℃の条件で、ずり速度1000(1/秒)の条件下でノズル径0.5mm、ノズル長さ10mmのノズルを用い、高下式フローテスターによって測定した値である。単位はPa・秒で表す。

【0083】また、融点(T_m)とは、示差走査熱量測定において、重合を完了したポリマーを室温から40℃/分の昇温条件で測定した際に観測される吸熱ピーク温度(T_{m1})観測後、T_{m1}＋20℃の温度で5分間保持した後、20℃/分の降温条件で室温までいったん冷却した後、再度20℃/分の昇温条件で測定した際に観測される吸熱ピーク温度(T_{m2})のピークを指す。

(3) 弾性率

テンシロン型引張試験(オリエンテック社製)に幅10mm、チャック間長さ100mmになるようにサンプルをセットし、23℃、65%RHの雰囲気下で引張速度200mm/分で引張試験を行い求めた。

(4) 表面粗大突起数(H3)

測定面(100cm²)同士を2枚重ね合わせて静電気力(印加電圧5.4kV)で密着させた後、2枚のフィルム間で粗大突起部分の光の干渉によって生じるニュートン環から粗大突起の高さを判定し、3重環以上の粗大突起数H3とした。なお、光源はハロゲンランプに564nmのバンドパスフィルターをかけて用いた。

(5) オリゴマー量(環状3量体)

ポリマー100mgをo-クロロフェノール1mlに溶解し、液体クロマトグラフィー(モデル8500VARIAN社製)で測定した。ポリマーに対する重量%で表した。

(6) フィルター汙圧およびフィルター汙圧の低減度

「押出条件」

スクリー回転速度	: 52rpm
スクリー計量部剪断速度	: 109(1/秒)
ポリマーの吐出量	: 3.6kg/時間
押出機設定温度	: 供給部 265℃
	圧縮部 280℃
	計量部 280℃
	ギアポンプ部 280℃
	フィルター部 280℃
ギアポンプ吐出量	: 1.6kg/時間

フィルター汙圧の低減度Rについては、下式で算出した。

【0088】 $R = [(P_0 - P_1) / P_0] \times 100$
 P_0 : スチレン系ポリマー(B)、主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル(C)を添加しない場合の汙圧(フィルター上流部圧力-フィルター下流部の圧力)
 P_1 : スチレン系ポリマー(B)、主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル(C)を添加しない場合の汙圧(フィルター上流部圧力-フィルター下流部の圧力)

(7) ポリスチレンの分子量

カラムとしてポリスチレンゲル、溶媒としてテトヒドロフランを用い、ゲルパークロマトグラフィー(GPC)により測定した。なお、分子量の校正は市販の単分散のポリスチレンを用いて行った。

(8) 長期耐熱性(破断伸度の半減時間)

長期耐熱性測定前のフィルムを長手方向あるいは幅方向に切り出し、テンシロン型引張試験機にて破断伸度を求める。該フィルムを加熱オーブンにて、190℃の雰囲気下で熱処理し、破断伸度が初期破断伸度の1/2に減少するのに要する時間を求める。

【0089】実施例1(表1、2)

ポリスチレン(平均分子量 3,000)を2重量%含

この評価目的のために使用した実験装置を図1に示す。

【0084】図に示すとおり実験装置は、押出機1の下流にギアポンプ3、フィルター4、押出口金8がこの順に短管5で接続されて構成されている。また、フィルター4の前後には、圧力検知端6、7が装着され、それぞれの位置の汙圧を測定できるようになっている。

【0085】また、9は、押出口金8からの溶融シートを製膜するキャスティングドラムである。

【0086】このような実験装置において、本実施例ではギアポンプ3として川崎重工製、1.6cc/回転のものを、フィルター4として日本精練(株)製のリーフディスクフィルター(NF-14D:65mm径)、80μmカット焼結フィルター1枚)および圧力計を備えたものを用いるとともに、押出機1として東芝製30mm小型押出機(L/D=22)を用い、下記条件でフィルター前後の圧力(PA)および圧力(PB)を測定した。

【0087】

有した固有粘度1.4(dL/g)のポリエチレンテレフタレート(以下「PET」とする)チップ(チップオリゴマー量 0.3重量%)を、180℃で10時間減圧乾燥(3Torr)した後、押出機1に供給し、脱気しながら280℃で溶融した。ポリマー等の詳細は、表1のとおりである。

【0090】このポリマーを30μm以上の異物等を95%の確率で除去する汙過精度を有する高精度フィルター4を用いて汙過した後、ドラフト比10で、Tダイ口金8から溶融シートを押出し、静電印加キャスト法を用いて表面温度25℃のキャスティングドラム9に巻き付けて冷却固化し、未延伸フィルム(固有粘度 1.21dL/g)を作った。このとき、フィルター汙圧の低減度は28%であった。押出機の吐出量を調節し、総厚さを調節した。

【0091】この未延伸フィルムを温度110℃にて、長手方向に4.2倍延伸した。この延伸は2組ずつのロールの周速差で、4段階で行った。この一軸延伸フィルムをテンターを用いて115℃で幅方向に4倍延伸した。このフィルムを定長下で210℃にて7秒間熱処理し、厚さ12μmの二軸配向PETフィルムをワインダーにて巻き取った。

【0092】この二軸配向PETフィルムの特性は、表2に示したとおり、高弾性率で、表面粗大突起数が少なく、低オリゴマーのため、磁気記録媒体用などの各種用途のフィルムとして優れた特性を有していた。

【0093】実施例2（表1、2）

ポリエステル（A）として、固有粘度1.0（d1/g）のPETを、180℃で10時間減圧乾燥（3 Torr）した後のチップ（チップオリゴマー量0.29重量%）と、減圧乾燥したスチレン系ポリマー（B）（平均分子量15,000）を押出機1に供給し、脱気しながら285℃で熔融した。ポリマー等の詳細は、表1のとおりである。

【0094】このポリマーを30μm以上の異物を95%の確率で除去する汜過精度を有する高精度フィルター4を用いて汜過した後、ドラフト比10で、Tダイ口金8から熔融シートを押出し、静電印加キャスト法を用いて表面温度25℃のキャストイング・ドラム9に巻き付けて冷却固化し、スチレン系ポリマー（B）を0.5重量%含有した未延伸フィルム（固有粘度0.9 d1/g）を作った。このとき、フィルター汜圧の低減度は21%であった。押出機の吐出量を調節し、総厚さを調節した。

【0095】後は、実施例1と同様にして、厚さ12μmの二軸配向PETフィルムを得た。

【0096】この二軸配向PETフィルムの特性は、表2に示したとおり、高弾性率で、表面粗大突起数が少なく、低オリゴマーのため、磁気記録媒体用などの各種用途のフィルムとして優れた特性を有していた。

実施例3（表1、2）

スチレン系ポリマー（B）（平均分子量3,000）を8重量%含有した、固有粘度0.9（d1/g）のPETチップ（チップオリゴマー量0.3重量%）を用いこと以外は、実施例1と同様にして、厚さ12μmの二軸配向PETフィルムを得た。ポリマー等の詳細は、表1のとおりである。

【0097】この二軸配向PETフィルムの特性は、表2に示したとおり、高弾性率で、表面粗大突起数が少なく、低オリゴマーのため、磁気記録媒体用などの各種用途のフィルムとして優れた特性を有していた。

【0098】実施例4（表1、2）

スチレン系ポリマー（B）（平均分子量15,000）を5重量%含有した、固有粘度1.2（d1/g）のポリエチレン-2、6-ナフタレンジカルボキシレート（以下「PEN」と称する）チップ（チップオリゴマー量0.24重量%）を、180℃で10時間減圧乾燥（3 Torr）した後、押出機1に供給し、脱気しながら300℃で熔融した。ポリマー等の詳細は、表1の

とおりである。

【0099】このポリマーを30μm以上の異物を95%の確率で除去する汜過精度を有する高精度フィルター4を用いて汜過した後、ドラフト比10で、Tダイ口金8から熔融シートを押出、静電印加キャスト法を用いて表面温度25℃のキャストイング・ドラム9に巻き付けて冷却固化し、未延伸フィルム（固有粘度1.08 d1/g）を作った。このとき、フィルター汜圧の低減度は30%であった。押出機の吐出量を調節し、総厚さを調節した。

【0100】この未延伸フィルムを温度142℃にて、長手方向に4.6倍延伸した。この延伸は2組ずつのロールの周速差で、4段階で行った。この一軸延伸フィルムをテンターを用いて148℃で幅方向に5倍延伸した。このフィルムを定長下で220℃にて5秒間熱処理し、厚さ10μmの二軸配向PENフィルムをワインダーにて巻き取った。

【0101】この二軸配向PENフィルムの特性は、表2に示したとおり、高弾性率で、表面粗大突起数が少なく、低オリゴマーのため、磁気記録媒体用などの各種用途のフィルムとして優れた特性を有していた。

【0102】実施例5（表1、2）

実施例2と同様の方法にて、固有粘度0.9 d1/gのPENチップ（チップオリゴマー量0.28重量%）を用いて、スチレン系ポリマー（B）を1重量%含有した未延伸フィルム（固有粘度0.82 d1/g）を作った。このとき、フィルター汜圧の低減度は28%であった。ポリマー等の詳細は、表1のとおりである。

【0103】この未延伸フィルムを実施例4と同様の方法にて延伸し、厚さ15μmの二軸配向PENフィルムを得た。

【0104】この二軸配向PENフィルムの特性は、表2に示したとおり、高弾性率で、表面粗大突起数が少なく、低オリゴマーのため、磁気記録媒体用などの各種用途のフィルムとして優れた特性を有していた。

【0105】実施例6（表1、2）

実施例1のPETチップとスチレン系ポリマー（B）に、さらに、下記の主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステルを2重量%添加すること以外は、実施例1と同様にして製膜し、厚さ12μmの二軸配向PETフィルムを得た。ポリマー等の詳細は、表1のとおりである。

【0106】主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル（C）としては、下記原料から重縮合した共重合ポリエステル（融点265℃、液晶開始温度240℃、溶解粘度5 Pa・秒）を用いた。

〔主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル原料1〕

ヒドロキシ安息香酸

共重合モル比

72：5

4、4'-ジヒドロキシビフェニル	7.5
エチレングリコール	20.0
テレフタル酸	27.5

この二軸配向PETフィルムの特性は、表2に示したとおり、高弾性率で、表面粗大突起数が少なく、低オリゴマーのため、磁気記録媒体用などの各種用途のフィルムとして優れた特性を有していた。

【0107】実施例7(表1、2)

実施例4のPENチップとスチレン系ポリマー(B)に、さらに、下記の主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル(C)を1重量%添加すること以外は、実施

例4と同様にして製膜し、厚さ10 μ mの二軸配向PENフィルムを得た。ポリマー等の詳細は、表1のとおりである。

【0108】主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル(C)としては、下記原料から重縮合した共重合ポリエステル(融点205℃、液晶開始温度180℃、熔融粘度10Pa・秒)を用いた(表1)。

「主鎖にメソゲン基を有する共重合ポリエステル原料1」

	共重合モル比
ヒドロキシ安息香酸	42.5
4、4'-ジヒドロキシビフェニル	7.5
エチレングリコール	50.0
テレフタル酸	57.5

この二軸配向PENフィルムの特性は、表2に示したとおり、高弾性率で、表面粗大突起数が少なく、低オリゴマーのため、磁気記録媒体用などの各種用途のフィルム

として優れた特性を有していた。

【0109】

【表1】

表1

	ポリエステル(A)	ポリエステル 固有粘度 (dl/g)	ポリスチレン系ポリマー(B)		共重合ポリエステル(C)	
			添加量 (%)	分子量	熔融粘度 (Pa・秒)	添加量 (%)
実施例1	PET	1.4	2	3,000		
実施例2	PET	1.0	0.5	15,000		
実施例3	PET	0.9	8	3,000		
実施例4	PEN	1.2	5	3,000		
実施例5	PEN	0.9	1	15,000		
実施例6	PET	1.4	2	3,000	5	2
実施例7	PEN	1.2	5	3,000	10	1
実施例8	PET	0.8	1.5	3,000		
実施例9	PET	1.0	0.5	15,000		

・PET: ポリエチレンテレフタレート

・PEN: ポリエチレン-2,6-ナフタレンジカルボキシレート

【0110】

【表2】

表2

	フィルター 濾圧の低減度 (%)	押出後の フィルムの固有 粘度(dI/g)	弾性率 (GPa) MD/TD	表面粗大 突起数 (個/100cm ²)	オリゴマー量 (wt%)
実施例1	28	1.21	9.5/6.4	2	0.34
実施例2	21	0.9	8.7/5.3	1	0.36
実施例3	15	0.84	8.1/5.2	3	0.37
実施例4	30	1.08	10.5/7	1	0.31
実施例5	28	0.82	10.1/6.2	2	0.31
実施例6	42	1.2	10.5/7.5	0	0.32
実施例7	39	1.12	11/7.2	0	0.28

・MD : 長手方向
・TD : 幅方向

【0111】実施例8(表1、3)

ポリスチレン(平均分子量 3,000)を1.5重量%含有した、固有粘度0.8(dI/g)のPETチップ(チップオリゴマー量 0.32重量%)を、180℃で10時間減圧乾燥(3Torr)した後、押出機1に供給し、脱気しながら280℃で溶融した。ポリマー等の詳細は、表1のとおりである。

【0112】このポリマーを60μm以上の異物等を95%の確率で除去する濾過精度を有する高精度フィルター4を用いて濾過した後、ドラフト比10で、Tダイロ金8から溶融シートを押出、静電印加キャスト法を用いて表面温度25℃のキャストイング・ドラム9に巻き付けて冷却固化し、未延伸フィルム(固有粘度0.72dI/g)を作った。このとき、フィルター濾圧の低減度は22%であった。押出機の吐出量を調節し、総厚さを調節した。

【0113】この未延伸フィルムを温度95℃にて、長手方向に3.4倍延伸した。この延伸は2組ずつのロールの周速差で、4段階で行った。この一軸延伸フィルムをテンターを用いて155℃で幅方向に3.4倍延伸した。このフィルムを定長下で210℃にて7秒間熱処理し、厚さ250μmの二軸配向PETフィルムをワインダーにて巻き取った。

【0114】この二軸配向PETフィルムの特性は、表3に示したとおり、長期耐熱性に優れ、表面粗大突起数が少なく、低オリゴマーのため、電気絶縁用などの各種用途のフィルムとして優れた特性を有していた。

【0115】実施例9(表1、3)

ポリエステル(A)として、固有粘度1.0(dI/g)

g)のPETを、180℃で10時間減圧乾燥(3Torr)した後のチップ(チップオリゴマー量 0.29重量%)と、減圧乾燥したスチレン系ポリマー(B)(平均分子量15,000)を押出機1に供給し、脱気しながら285℃で溶融した。ポリマー等の詳細は、表1のとおりである。

【0116】このポリマーを60μm以上の異物等を95%の確率で除去する濾過精度を有する高精度フィルター4を用いて濾過した後、ドラフト比10で、Tダイロ金8から溶融シートを押出、静電印加キャスト法を用いて表面温度25℃のキャストイング・ドラム9に巻き付けて冷却固化し、スチレン系ポリマー(B)を0.5重量%含有した未延伸フィルム(固有粘度 0.9dI/g)を作った。このとき、フィルター濾圧の低減度は21%であった。押出機の吐出量を調節し、総厚さを調節した。

【0117】この未延伸フィルムを温度95℃にて、長手方向に3.4倍延伸した。この延伸は2組ずつのロールの周速差で、4段階で行った。この一軸延伸フィルムをテンターを用いて135℃で幅方向に3.6倍延伸した。このフィルムを定長下で215℃にて8秒間熱処理し、厚さ125μmの二軸配向PETフィルムをワインダーにて巻き取った。

【0118】この二軸配向PETフィルムの特性は、表3に示したとおり、長期耐熱性に優れ、表面粗大突起数が少なく、低オリゴマーのため、電気絶縁用などの各種用途のフィルムとして優れた特性を有していた。

【0119】

【表3】

表3

	フィルター 濾圧の低減度 (%)	押出後の フィルムの固有 粘度(dI/g)	長期耐熱性 (時間) MD/TD	表面粗大 突起数 (個/100cm ²)	オリゴマー量 (wt%)
実施例8	22	0.72	85/95	2	0.34
実施例9	21	0.9	100/100	1	0.36

【0120】比較例1(表4、5)

実施例1において、スチレン系ポリマー(B)を含有していないこと以外は、実施例1と同様にして、二軸配向PETフィルムを得た。ポリマー等の詳細は、表4のとおりである。

【0121】このフィルムは、表5に示したとおり、弾性率が低く、表面粗大突起数が多く、オリゴマー量も多いため、磁気記録媒体用などの各種フィルムとして使用するには不適切である。

【0122】比較例2(表4、5)

実施例4において、スチレン系ポリマー(B)を含有していないこと以外は、実施例4と同様にして、二軸配向PENフィルムを得た。ポリマー等の詳細は、表4のとおりである。

【0123】このフィルムは、表5に示したとおり、弾性率が低く、表面粗大突起数が多く、オリゴマー量も多いため、磁気記録媒体用などの各種フィルムとして使用するには不適切である。

【0124】比較例3(表4、5)

実施例3において、平均分子量が500のスチレン系ポリマー(B)を用いること以外は、実施例3と同様にして、二軸配向PETフィルムを得た。ポリマー等の詳細は、表4のとおりである。

【0125】このフィルムは、表5に示したとおり、弾性率が低く、表面粗大突起数が多く、オリゴマー量も多いため、磁気記録媒体用などの各種フィルムとして使用するには不適切である。

【0126】比較例4(表4、5)

実施例3において、平均分子量150,000のスチレ

ン系ポリマー(B)を用いること以外は、実施例3と同様にして、二軸配向PETフィルムを得た。ポリマー等の詳細は、表4のとおりである。

【0127】このフィルムは、表5に示したとおり、弾性率が低く、表面粗大突起数が多く、オリゴマー量も多いため、磁気記録媒体用などの各種フィルムとして使用するには不適切である。

【0128】比較例5(表4、5)

実施例5において、平均分子量が500のスチレン系ポリマー(B)を用いること以外は、実施例5と同様にして、二軸配向PENフィルムを得た。フィルム製膜時、スチレン系ポリマー(B)のブリードアウトが激しかった。ポリマー等の詳細は、表4のとおりである。

【0129】このフィルムは、表5に示したとおり、弾性率が低く、表面粗大突起数が多く、オリゴマー量も多いため、磁気記録媒体用などの各種フィルムとして使用するには不適切である。

【0130】比較例6(表4、5)

実施例5において、平均分子量が200,000のスチレン系ポリマー(B)を用いること以外は、実施例5と同様にして、二軸配向PENフィルムを得た。ポリマー等の詳細は、表4のとおりである。

【0131】このフィルムは、表5に示したとおり、圧低減効果が小さく、弾性率が低く、表面粗大突起数が多く、オリゴマー量も多いため、磁気記録媒体用フィルムなどの各種フィルムとして使用するには不適切である。

【0132】

【表4】

表 4

	ポリエステル(A)	ポリエステル 固有粘度 (dl/g)	ポリスチレン系ポリマー(B)	
			添加量 (%)	分子量
比較例 1	PET	1.4	0	—
比較例 2	PEN	1.2	0	—
比較例 3	PET	0.9	8	500
比較例 4	PET	0.9	8	150,000
比較例 5	PEN	0.9	1	500
比較例 6	PEN	0.9	1	200,000
比較例 7	PET	0.8	0	—
比較例 8	PET	1.0	0	—

・PET：ポリエチレンテレフタレート

・PEN：ポリエチレン-2,6-ナフタレンジカルボキシレート

【0133】

【表5】

表 5

	フィルター 減圧の低減度 (%)	押出後の フィルムの固有 粘度(dI/g)	弾性率 (GPa) MD/TD	表面粗大 突起数 (個/100cm ²)	オリゴマー量 (wt%)
比較例 1	0	0.85	7.5/5.6	30	1.1
比較例 2	0	0.71	6.8/5.2	28	0.9
比較例 3	2	0.65	6.4/5	25	0.65
比較例 4	3	0.7	4/4.2	18	0.61
比較例 5	4	0.7	8.1/6.2	15	0.52
比較例 6	3	0.73	7/5.2	16	0.55

・MD：長手方向

・TD：幅方向

【0134】比較例7（表4、6）

実施例8において、スチレン系ポリマー（B）を含有し

ていないこと以外は、実施例8と同様にして、二軸配向PETフィルムを得た。ポリマー等の詳細は、表4のとおりである。

【0135】このフィルムは、表6に示したとおり、オリゴマー量が多く、長期耐熱性が悪化し、電気絶縁用フィルムとして使用するには不適切である。

【0136】比較例8(表4、6)

実施例9において、スチレン系ポリマー(B)を含有し

ていないこと以外は、実施例9と同様にして、二軸配向PETフィルムを得た。ポリマー等の詳細は、表4のとおりである。

【0137】このフィルムは、表6に示したとおり、オリゴマー量が多く、長期耐熱性が悪化し、電気絶縁用フィルムとして使用するには不適切である。

【0138】

【表6】

表6

	フィルター 濾圧の低減度 (%)	押出後の フィルムの固有 粘度(dI/g)	長期耐熱性 (時間) MD/TD	表面粗大 突起数 (個/100cm ²)	オリゴマー量 (wt%)
比較例7	0	0.69	65/70	20	0.9
比較例8	0	0.82	70/75	25	1.2

【0139】

【発明の効果】本発明のポリエステルフィルムは、ポリエステル(A)とスチレン系ポリマー(B)からなり、スチレン系ポリマー(B)の平均分子量が1,000から20,000の範囲内で含有されているので、該ポリエステルフィルムの弾性率が高まると共に、フィルムの表面欠点やオリゴマー量も低いという優れた効果を有する。

【0140】また、本発明のポリエステルフィルムの製造方法は、押出機にてポリマーを熔融押出した後、フィルターで濾過し、口金からシート状に押し出して製膜するポリエステルフィルムの製造方法において、ポリエステル(A)をフィルターで濾過する前までに、スチレン系ポリマー(B)を0.05から10重量%の範囲内で添加して製膜するので、熔融押出し時のポリマーの熔融粘度が低下し、何ら既存の装置を改造することなく、濾圧、剪断発熱、押出トルク等を大幅に低下できる製造方法が得られる。すなわち、この製造方法により上記高品質のポリエステルフィルムが容易に製造できるので、本発明は磁気記録用、電気絶縁用など各種フィルム用途に広く活用が可能である。

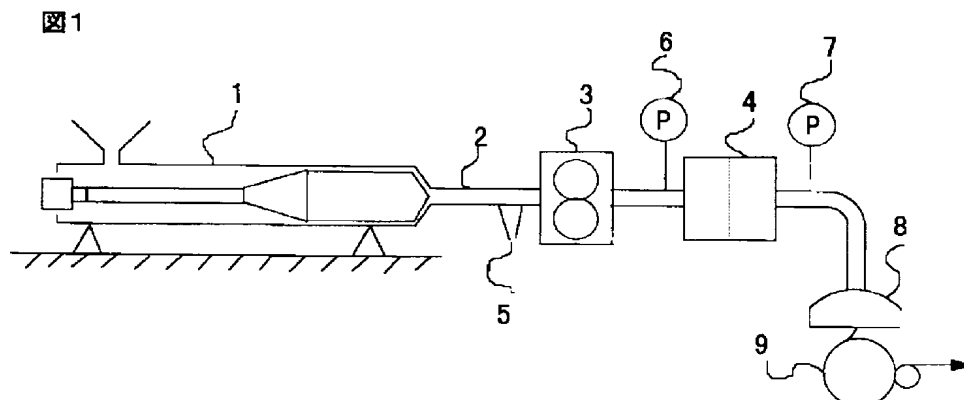
【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のフィルター濾圧およびフィルター濾圧の低減度評価のために用いた押出実験装置の一例を示した概略図である。

【符号の説明】

- 1：押出機
- 2：短管
- 3：ギアポンプ
- 4：フィルター
- 5：ブリード口
- 6：フィルター上流部圧力計
- 7：フィルター下流部圧力計
- 8：押出口金
- 9：キャスティングドラム

【図1】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁶

識別記号

F I

G 1 1 B 5/84

G 1 1 B 5/84

Z

//(C 0 8 L 67/02

25:04)

B 2 9 K 67:00

B 2 9 L 7:00